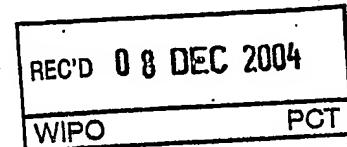


# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

EP04109439



## PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

### Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 103 40 884.3

Anmeldetag: 4. September 2003

Anmelder/Inhaber: Professor Dr.-Ing. Ulrich Riebel,  
03096 Briesen/DE

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen  
Flammenaerosolen und Vorrichtung zur Durchführung  
des Verfahrens

IPC: C 09 C 1/48

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 16. November 2004  
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident  
Im Auftrag

Stanschus

Post Available Copy



04.09.2003

02339-03 La/es/dn

**Prof. Dr. Ulrich Riebel**  
**D-03096 Briesen**

---

Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen und Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

---

#### **Zusammenfassung**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen, bestehend aus den Schritten: Entzug der Wärme aus der Flamme durch Wärmeableitung und/oder Strahlung, Ausbildung einer dünnen Gasgrenzschicht, Beschleunigung bzw. Dehnung der von der Flamme und der Grenzschicht gebildeten Strömung, Ableitung des gebildeten Aerosols und Reinigung der kühlenden Oberfläche. Die Erfindung betrifft weiterhin eine Vorrichtung zur Durchführung eines derartigen Verfahrens.

4  
04.09.2003  
02339-03 La/es

Prof. Dr. Ulrich Riebel  
D-03096 Briesen

---

Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen und Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

---

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen sowie eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens.

Mittels des erfindungsgemäßen Verfahrens soll Ruß in Form von Aerosolen mit reproduzierbaren und einstellbaren Eigenschaften erzeugt werden. Derartige Eigenschaften sind die Ruß-Konzentration und die Partikelgrößenverteilung, der Agglomerationszustand und die chemische Zusammensetzung. Derartige Aerosole werden benötigt, um z. B. Filter, Elektroabscheider oder Katalysatoren hinsichtlich der Rußabscheidung zu testen. Weiterhin können die so gewonnenen Aerosole abgeschieden werden, um z. B. Pigmente oder Füllstoffe zu erzeugen.

Das Verfahren ist auch geeignet, um andere, in Flammen erzeugbare Aerosole wie z. B. SiO<sub>2</sub> oder TiO<sub>2</sub> mit besonderen Eigenschaften zu erzeugen.

Aus der Literatur sind bislang 2 Verfahren zur Erzeugung von Test-Aerosolen aus Ruß bekannt geworden.

Beim Lichtbogen-Verfahren (C. Helsper, W. Möller, G. Wenninger: Investigation of a New Aerosol Generator for the Production of Carbon Aggregate Particles. Atmospheric Environment, Vol. 27A (1993), pp 1271 - 1275) wird zwischen zwei Kohlenstoff-Elektroden, die sich in Argongas befinden, in kurzen Zeitabständen ein Lichtbogen gezündet. Dabei wird eine geringe Menge des Elektrodenmaterials verdampft, das im Argon-Strom zu feinen Rußteilchen kondensiert, die mit dem Argonstrom ausgetragen werden. Das Verfahren hat zwei Nachteile: Erstens besteht der erzeugte Ruß ausschließlich aus Kohlenstoff, während reale Ruße stets Anteile von Kohlenwasserstoffen und Sauerstoff enthalten, die die Eigenschaften in sehr starkem Maße beeinflussen. Zweitens können mit diesem Verfahren nur sehr geringe Mengen an Aerosol erzeugt werden, die für die obengenannten Anwendungen meist nicht ausreichen.

Beim Löschgas-Verfahren (L. Jing: Neuer Russgenerator für Verbrennungsrußteilchen zur Kalibrierung von Partikelmessgeräten. OFMETInfo Vol. 7 (2000), no. 2, pp 8 - 12) wird eine Diffusionsflamme durch Zuführen einer großen Menge an Löschgas (z.B. Stickstoff) abgekühlt und zum Erlöschen gebracht. Bei diesem Verfahren können zwar Ruße mit realistischer chemischer Zusammensetzung erzeugt werden. Problematisch ist der sehr hohe Verbrauch an Löschgas, was erhebliche Kosten verursacht. Daher ist auch dieser Typ vom Rußaerosol-Generator bisher nur für sehr geringe Mengenströme realisiert worden.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren bereitzustellen, durch das große Mengen von Rußaerosol kostengünstig und mit geringem Aufwand bereitgestellt werden können.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch ein Verfahren mit dem Merkmal des Anspruchs 1 gelöst. Dieses Verfahren besteht aus einer Kombination folgender Schritte:

- a) Entzug der Wärme aus der Flamme durch Wärmeleitung und/oder

-strahlung, wobei die Wärme an eine feste, kalte Oberfläche oder eine Flüssigkeitsoberfläche abgegeben wird,

- b) Ausbildung einer dünnen Gasgrenzschicht, beispielsweise aus Luft, zwischen der Flamme und der kühlenden Oberfläche, um die Ablagerung von Aerosolteilchen auf der Oberfläche zu verhindern;
- c) Beschleunigung bzw. Dehnung der von der Flamme und der Grenzschicht gebildeten Strömung, um die Strömung laminar zu halten und eine möglichst dünne Grenzschicht zu erreichen,
- d) Ableitung des gebildeten Aerosols aus der Nähe der kalten Oberfläche und
- e) Reinigung der kühlenden Oberfläche.

Das Verfahren basiert auf dem aus der industriellen Rußherstellung bekannten Gasruß- oder Channelverfahren, das derart abgewandelt wird, dass der Ruß überwiegend als Aerosol anfällt. Beim Gasruß- oder Channelverfahren wird eine Diffusionsflamme gegen eine kalte Metalloberfläche gerichtet, wobei sich der Ruß direkt aus der Flamme an der kalten Oberfläche abscheidet und später von der Oberfläche abgeschabt wird.

Auch bei der vorliegenden Erfindung wird eine kalte Oberfläche genutzt, um der Flamme möglichst viel Wärme zu entziehen. Gleichzeitig wird jedoch verhindert, dass sich der Ruß auf der kalten Oberfläche absetzen kann. Dieses geschieht erfindungsgemäß, indem zwischen der Flamme und der kalten Oberfläche eine dünne Grenzschicht von partikelfreiem Gas eingefügt wird. Aufgrund der sehr hohen Wärmeableitung durch die Oberfläche ist es möglich, ein sauerstoffhaltiges Gas, wie beispielsweise Luft für die Erzeugung der Grenzschicht zu verwenden. Es kann aber auch ein sauerstofffreies Gas (z. B. N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>) zugeführt werden, oder es kann eine sauerstoffarme Grenzschicht erzeugt werden, indem ein dünner, auf der küh-

lenden Oberfläche befindlicher Wasserfilm direkt durch die Hitze der Flamme verdampft wird.

Als kalte Oberfläche kann vorteilhaft ein ausreichend dickwandiger Körper aus Metall oder einem anderen hochwärmeleitfähigen Material eingesetzt werden. Zusätzlich kann die Oberfläche von der Rückseite durch Wasser oder Luft gekühlt werden. Als kalte Oberfläche kann aber auch ein strömender Flüssigkeitsfilm eingesetzt werden, der die aus der Flamme abzuführende Wärme durch Konvektion und durch Verdampfung abführen kann. Bevorzugte Ausgestaltungen des Verfahrens ergeben sich aus den sich an den Anspruch 1 anschließenden Unteransprüchen 2 bis 12.

Die eingangs gestellte Aufgabe wird auch durch eine Vorrichtung zur Durchführung des vorgenannten erfindungsgemäßen Verfahrens gelöst, bei der neben einer Flamme-Erzeugungseinrichtung und einer kühlenden Oberfläche, gegen die die erzeugte Flamme richtbar ist, eine Einrichtung zur Erzeugung einer gäsförmigen Grenzschicht zwischen Oberfläche und Flamme vorhanden ist. Bevorzugte Ausgestaltungen der erfindungsgemäßen Vorrichtung ergeben sich aus den sich an den Anspruch 13 anschließenden Unteransprüchen 14 bis 20.

Weitere Einzelheiten und Vorteile der Erfindung werden anhand von in der Zeichnung dargestellten Unteransprüchen näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1: schematisch mehrere Ausführungsbeispiele der erfindungsgemäßen Vorrichtung und

Fig. 2-7 weitere schematische Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Vorrichtung.

Wie in Fig. 1 anhand unterschiedlicher Konfigurationen gezeigt, wird eine Flamme 10 gegen eine kühlende Oberfläche 1 gerichtet, wobei zwischen der Flamme 10 und der kühlenden Oberfläche eine Grenzschicht 5 erzeugt wird. Entsprechend der

Fig. 1a wird zur Erzeugung der Grenzschicht die kühlende Oberfläche senkrecht zur Achse der Flamme 10 in Pfeilrichtung bewegt. In Fig. 1b wird die kühlende Oberfläche 1 schräg zur Achse der Flamme 10 bewegt.

Wie aus Fig. 1c ersichtlich, kann zusätzlich ein verstellbares Leitblech 15 vorgesehen sein, dass eine Einstellung der Grenzschichtdicke erlaubt und verhindert, dass die Flamme durch Turbulenzen gestört wird. Eine weitere Variante entsprechend der Fig. 1c sieht vor, dass das Leitblech 15 mit einer Zuführung 16 für ein Gas versehen ist, um die Grenzschicht mit einem gewünschten speziellen Gas, beispielsweise  $N_2$  anzureichern.

Alternativ oder zusätzlich kann ein Film von Wasser oder einer anderen leicht verdampfbaren, nicht brennbaren Flüssigkeit auf die kühlende Oberfläche aufgetragen werden, um die Kühlwirkung zu verbessern und zugleich bei der Berührung der heißen Flammengase mit der Oberfläche eine flammenkühlend wirkende Dampf-Grenzschicht zu entwickeln. Der Flüssigkeitsfilm kann in bekannter Weise, z. B. durch Aufsprühen der Flüssigkeit, durch Eintauchen der Oberfläche in ein Bad, durch Auftragswalzen etc. erzeugt werden. Dabei kann es vorteilhaft sein, die Oberfläche aufzurauhen und mit einer dünnen Schicht eines saugfähigen Materials zu beschichten.

Weitere Wege zur Erzeugung einer geeigneten Grenzschicht bestehen darin, dass die kühlende Oberfläche durch eine strömende, verdampfbare Flüssigkeit gebildet wird, oder aus einem porösen Material, z. B. Sintermaterial besteht, aus dem ein Gas oder eine verdampfbare Flüssigkeit austritt.

Eine Störung der Grenzschicht durch Turbulenzen kann besonders wirksam vermieden werden, wenn die Aerosolerzeugung in einer beschleunigten Strömung stattfindet. Hierzu kann, wie in Fig. 2 gezeigt, ein Strömungskanal zwischen zwei kühlenden Oberflächen 1 gebildet werden, wobei die zu kühlende Flamme 10 und die umgebenden Grenzschichten 5 im konvergenten Teil 12 eines Kanals bis hin zur engsten Stelle trotz hoher Strömungsgeschwindigkeiten in einem laminaren

Strömungszustand gehalten werden können. Auch in einer konvergenten Düse mit einer kühlenden Oberfläche kann diese Wirkung erzielt werden. In der in Fig. 2 dargestellten Ausführungsvariante der Erfindung wird die kühlende Oberfläche in Form eines Wasserfilms 2 bereitgestellt. Durch die abwärts gerichtete und beschleunigte Strömung der Flamme 10 und der Verbrennungsgase wird die Entstehung von Turbulenzen und somit die unerwünschte Vermischung des entstehenden Rußaerosols 11 mit dem Gas oder Dampf in der Grenzschicht weitgehend vermieden.

Trotz der Grenzschicht ist es möglich, dass ein geringer Teil des erzeugten Rußes auf der kühlenden Oberfläche abgeschieden wird. Daher kann es vorgesehen sein, die kühlende Oberfläche an einem Schaber, einer Bürste, einer Pressluftdüse, einem Flüssigkeitsbad oder einer anderen geeigneten Vorrichtung vorbeizuführen, um die Oberfläche sauber zu halten.

Bei der Erzeugung von Ruß besteht die besondere Schwierigkeit, dass sich ein erheblicher Teil des Aerosols in direkter Nähe zur kühlenden Oberfläche befindet. Durch die Bewegung der kühlenden Oberfläche oder durch Turbulenzen der Strömung kann dieser Teil des Aerosols unkontrolliert verteilt oder auf der Oberfläche abgeschieden werden. Um das Rußaerosol aber möglichst direkt und verlustarm abzuführen, ist es in einer Ausführungsvariante gemäß Abbildung 3 vorgesehen, das oberflächennahe Aerosol direkt nach seiner Erzeugung durch ein Leitblech 20 von der kühlenden Oberfläche abzustreifen und zu sammeln. Alternativ oder zusätzlich kann durch eine hier nicht näher dargestellte Düse eine Gasströmung zugeführt werden, die das Aerosol von der kühlenden Oberfläche ablöst.

In Fig. 4 ist eine Anordnung gezeigt, bei der die kühlende Oberfläche durch eine um eine horizontale Achse 3 rotierende Metallplatte 4 realisiert ist. Zur Kühlung und zur Beschichtung mit einem Flüssigkeitsfilm kann die Metallplatte 4 in ein Wasserbad 5 eintauchen. Im oberen Teil werden eine oder mehrere Flammen 10 von einer oder von beiden Seiten auf die Metallplatte 4 gerichtet. Zusätzlich sind Leitbleche 15 zur Einstellung der Grenzschicht sowie ein Leitblech 20 zum Sammeln des Aerosols vorgesehen. Die Metallplatte kann durch einen Schaber oder eine Bürste (hier nicht

dargestellt), durch einen Gasstrahl oder durch Beschallung mit Ultraschall während des Durchgangs durch das Wasserbad gereinigt werden.

Die in Fig. 4 gezeigte Vorrichtung ist vor allem geeignet, um den Ruß durch die Verbrennung von Gasen oder verdampften Flüssigkeiten zu erzeugen. Wenn der Ruß auf der Basis einer brennbaren Flüssigkeit erzeugt werden soll, ist die in Fig. 5 gezeigte Anordnung besonders vorteilhaft, da die Flamme 10 senkrecht steht und mit einem Dochtbrenner 30 erzeugt wird. Eine weitere Besonderheit besteht darin, dass durch zwei rotierenden Walzen 31 zwei kühlende Oberflächen bereitgestellt werden. Erfindungsgemäß ist vorgesehen, dass der Abstand zwischen den Walzen, die Rotationsgeschwindigkeit der Walzen sowie die am Walzenspalt anliegende Drückdifferenz einstellbar sind, um die Flamme zu einer dünnen Schicht auszuziehen und besonders schnell abzukühlen. Weiterhin sind Leitbleche 15 zum Einstellen der Grenzschicht und Leitbleche 20 zum Sammeln des Aerosols vorgesehen. Bei Bedarf können auch die Walzen 31 mit einer verdampfenden Flüssigkeit beschichtet werden, beispielsweise durch eine Auftragswalze 33 die in ein entsprechendes Flüssigkeitsbad 34 eintaucht. Schließlich kann vorgesehen werden, die Walzen von innen zu kühlen, beispielsweise durch Spülen mit einer Kühlflüssigkeit (hier nicht näher gezeigt).

In Fig. 6 ist eine weitere Variante dargestellt, bei der die kühlenden Oberflächen durch umlaufende Bänder 35, beispielsweise aus Metall oder einem saugfähigen Textil gebildet sind. Diese Variante ist besonders geeignet, wenn die kühlende Oberfläche befeuchtet oder in dem Flüssigkeitsbad 40 gereinigt werden soll.

Die übrigen Komponenten in der Ausführungsvariante gemäß Fig. 6 entsprechen denjenigen gemäß Fig. 5, so dass sie hier keiner weiterer Erläuterung bedürfen.

Schließlich zeigt die Fig. 7 eine Variante, bei der die aerosolfreien Grenzschichten 5 ohne bewegte Teile erzeugt werden. Die Grenzschicht wird in diesem Fall erfindungsgemäß durch die Permeation eines Gases durch eine poröse Oberfläche 50 erzeugt. Durch das Anlegen einer Drückdifferenz zur Beschleunigung der Strömung

im Spalt wird die Flamme 10 auf die Spaltmitte zentriert und es wird verhindert, dass sich Turbulenzen ausbilden können.

04.09.2003  
02339-03 La/es/dn

**Prof. Dr. Ulrich Riebel  
D-03096 Briesen**

---

Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen und Vorrich-  
tung zur Durchführung des Verfahrens

---

**Patentansprüche**

1.. Verfahren zur Herstellung von Ruß oder anderen Flammenaerosolen,

**gekennzeichnet durch folgende Schritte:**

- a) Entzug der Wärme aus der Flamme durch Wärmeleitung und/oder -strahlung, wobei die Wärme an eine feste, kalte Oberfläche oder eine Flüssigkeitsoberfläche abgegeben wird,
- b) Ausbildung einer dünnen Gasgrenzschicht, beispielsweise aus Luft, zwischen der Flamme und der kühlenden Oberfläche, um die Ablagerung von Aerosolteilchen auf der Oberfläche zu verhindern,

- c) Beschleunigung bzw. Dehnung der von der Flamme und der Grenzschicht gebildeten Strömung, um die Strömung laminar zu halten und eine möglichst dünne Grenzschicht zu erreichen,
- d) Ableitung des gebildeten Aerosols aus der Nähe der kalten Oberfläche und
- e) Reinigung der kühlenden Oberfläche.

- 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Grenzschicht durch Zuführen einer Gasströmung zwischen die Flamme und die kühlende Oberfläche erzeugt wird.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Grenzschicht mittels einer Bewegung der kühlenden Oberfläche in den Bereich der Flamme geführt wird.
- 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Grenzschicht mittels eines Leitbleches zwischen die Flamme und die kühlende Oberfläche eingeführt wird.
- 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Grenzschicht durch eine Durchströmung der Öffnungen oder Poren besitzenden kühlenden Oberfläche mit einem Gas oder Dämpf erzeugt wird.
- 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Grenzschicht durch die Verdampfung einer Flüssigkeit auf der kühlenden Oberfläche erzeugt wird.
- 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Flamme zwischen zwei kühlenden Oberflächen mit zwei Grenzschichten geführt wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Flamme in einem konvergenten Spalt oder einem konvergenten Kanal mit kühlenden Oberflächen und mit Grenzschichten abgekühlt wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass die Flamme in einem konvergenten Spalt zwischen zwei sich drehenden Walzen mit kühlenden Oberflächen und mit Grenzschichten abgekühlt wird.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die das Aerosol enthaltende Strömungsschicht von der kühlenden Oberfläche durch eine mit einem Gas durchströmte Düse entfernt wird.
11. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der Ansprüche 7 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Strömungsgeschwindigkeit in der engsten Stelle des konvergenten Spalts wesentlich höher gewählt wird als die Austrittsgeschwindigkeit der Flamme aus dem Brenner.
12. Verfahren nach einem der Ansprüche 7 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Strömungsgeschwindigkeit in der engsten Stelle des konvergenten Spalts über die am Spalt anliegende Druckdifferenz gemessen und geregelt wird.
13. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 12, gekennzeichnet durch eine Flammerzeugungseinrichtung und eine kühlende Oberfläche, gegen die die erzeugte Flamme richtbar ist, sowie Einrichtungen zur Erzeugung einer gasförmigen Grenzschicht zwischen Oberfläche und Flamme.
14. Vorrichtung nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass ein Leitblech zwischen der Flamme und der kühlenden Oberfläche angeordnet ist.

15. Vorrichtung nach Anspruch 13 oder 14, dadurch gekennzeichnet, dass die kühlende Oberfläche Öffnungen oder Poren besitzt, durch die kühlendes Gas durchtreten kann.
16. Vorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die kühlende Oberfläche durch zwei sich drehende Walzen gebildet ist.
17. Vorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die kühlenden Oberflächen des konvergenten Spaltes aus jeweils einem umlaufenden Band, das im Bereich des Spaltes über eine Walze geführt wird und das außerdem ein Flüssigkeitsbad zur Reinigung und Kühlung durchläuft, bestehen.
18. Vorrichtung nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass das Band porös ist, wobei es beispielsweise aus einem Textil besteht, und mit Flüssigkeit getränkt ist.
18. Vorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Spaltweite in der engsten Stelle des konvergenten Spalts im Bereich von 0,5 bis 10 mm einstellbar ist.
19. Vorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Abstand zwischen dem Fußpunkt der Flamme und der kühlenden Oberfläche einstellbar ist.
20. Vorrichtung nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Abstand zwischen dem Fußpunkt der Flamme und der engsten Stelle des konvergenten Spalts einstellbar ist.

Fig. 1

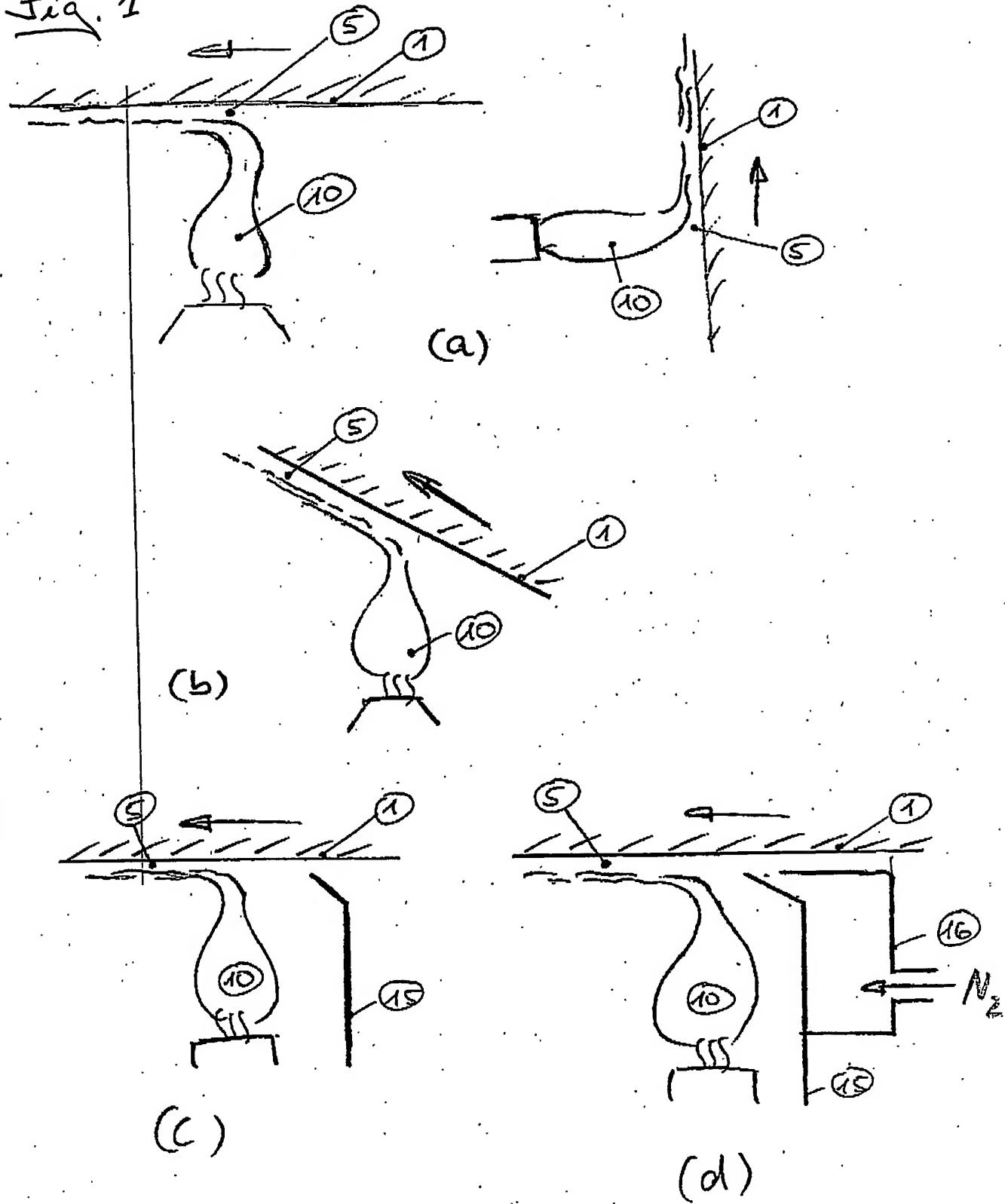


Fig. 2

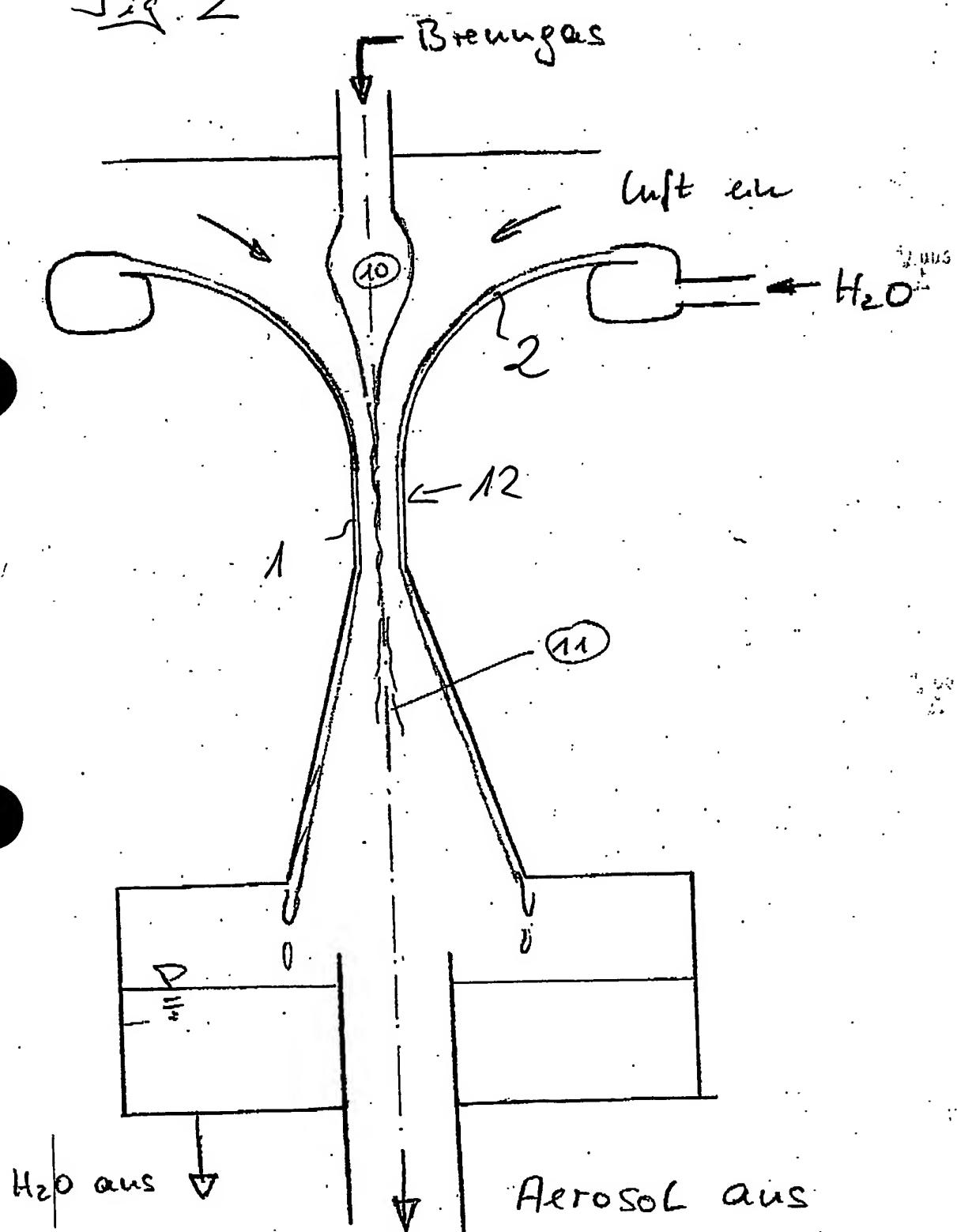


Fig. 3

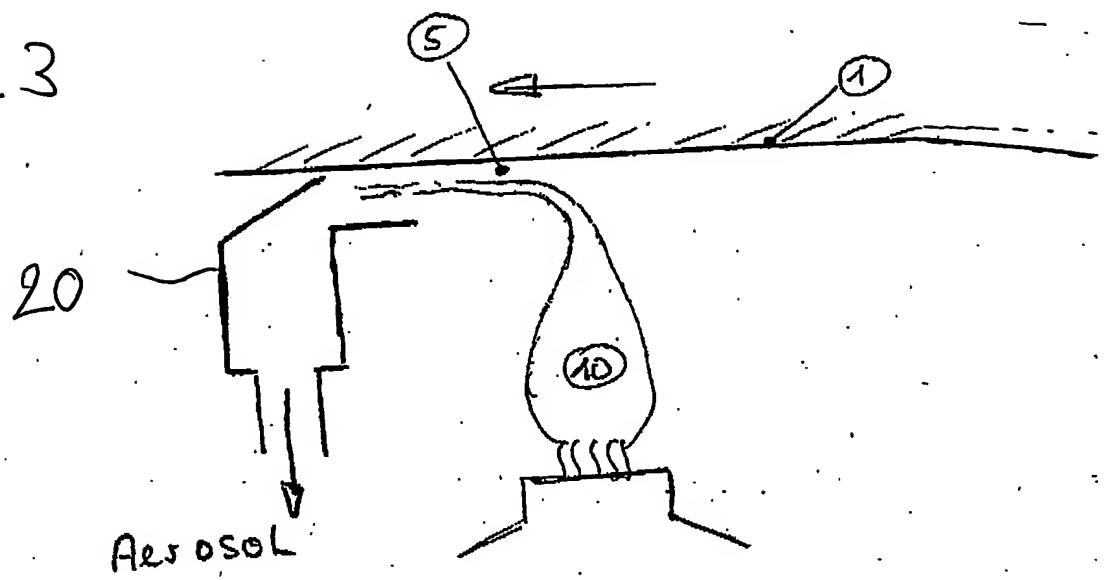


Fig 5

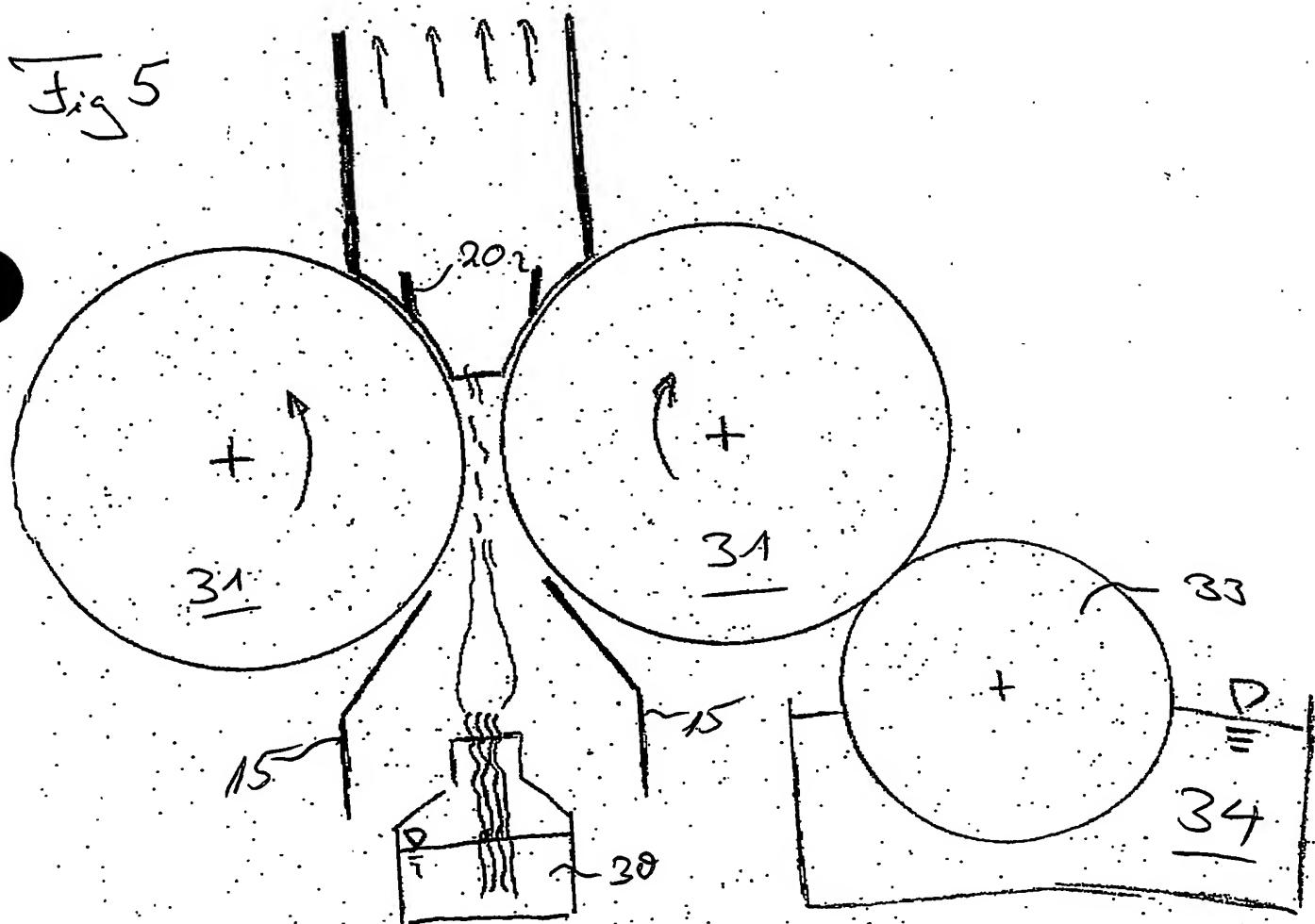


Fig. 4

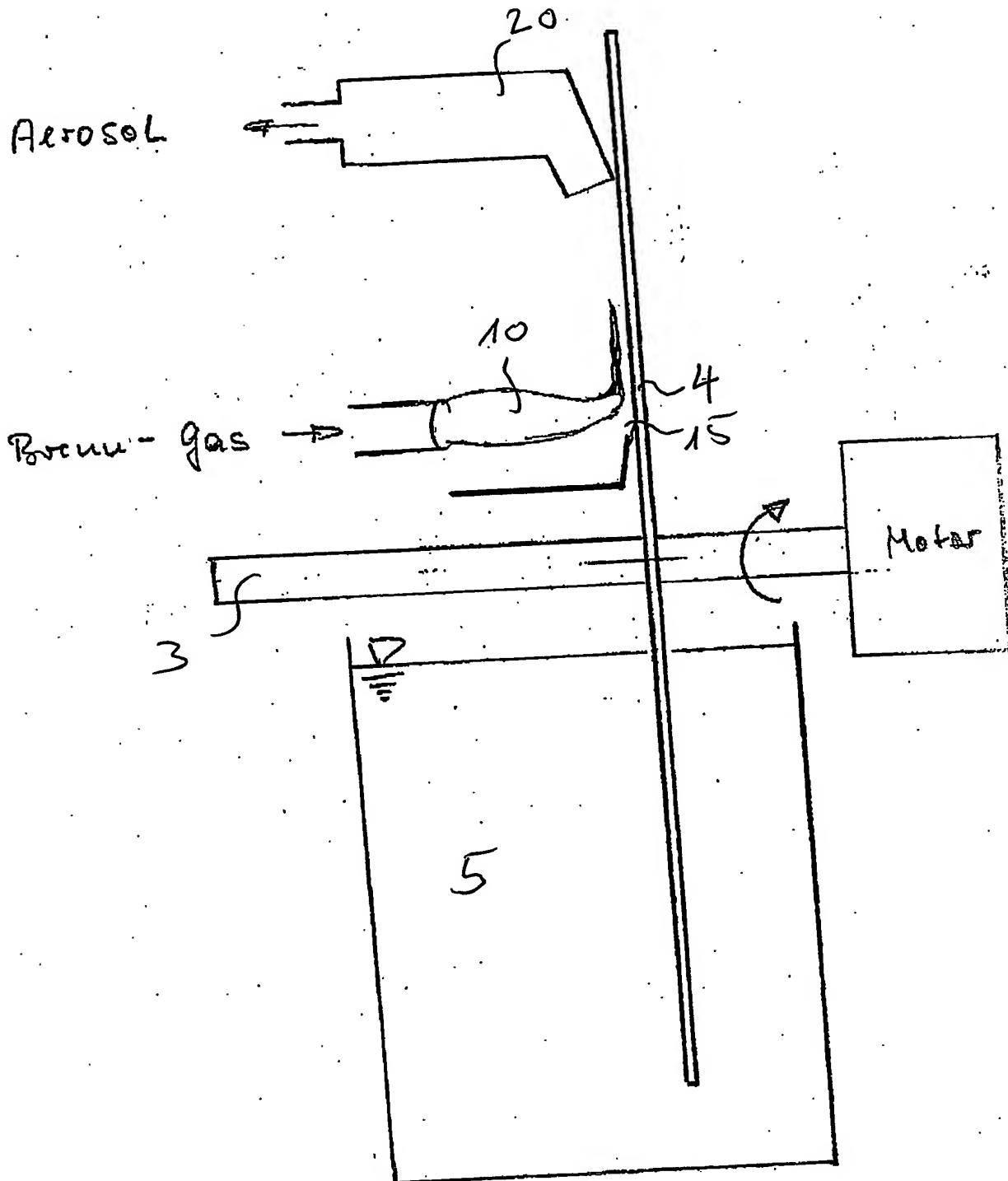
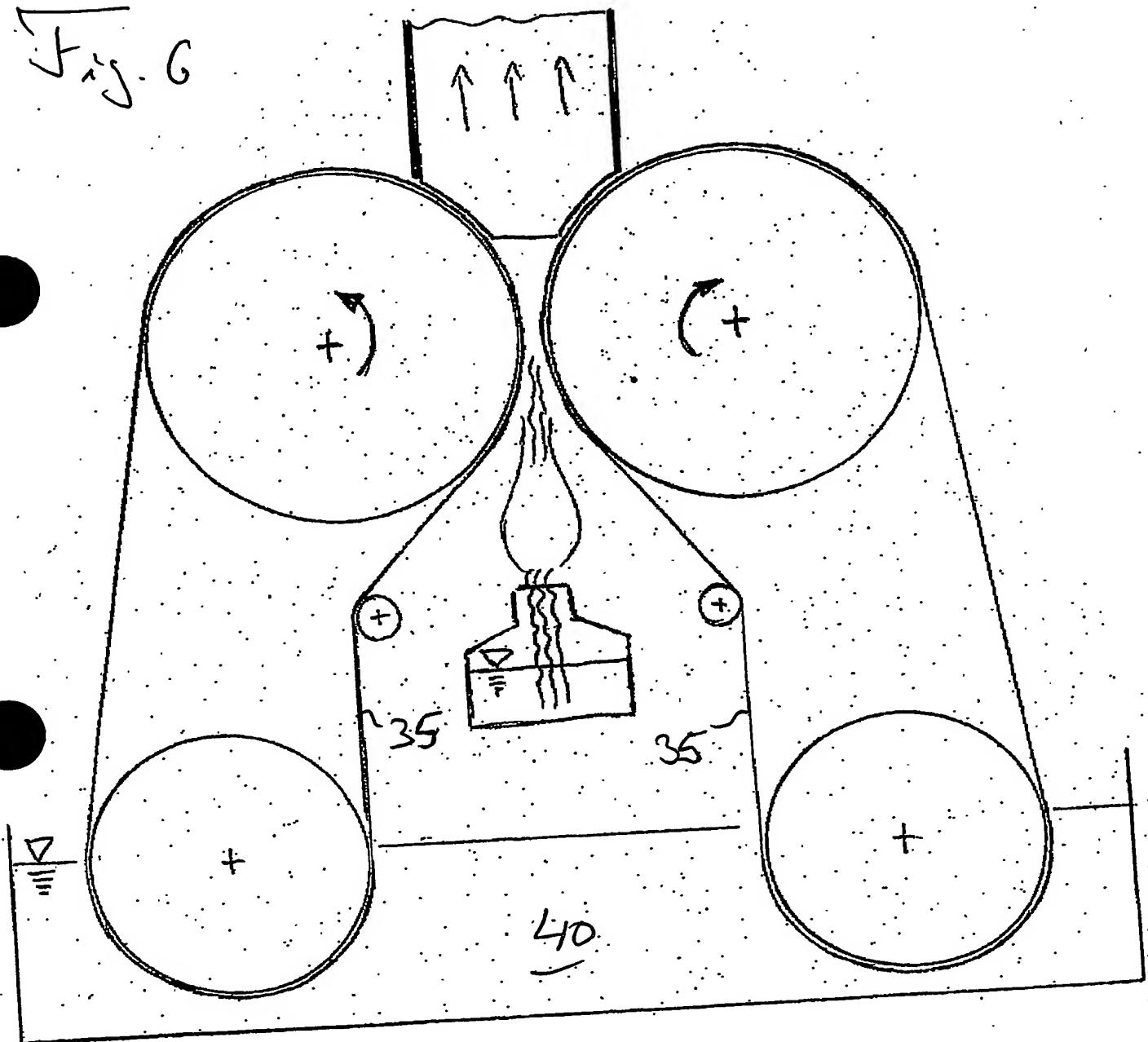
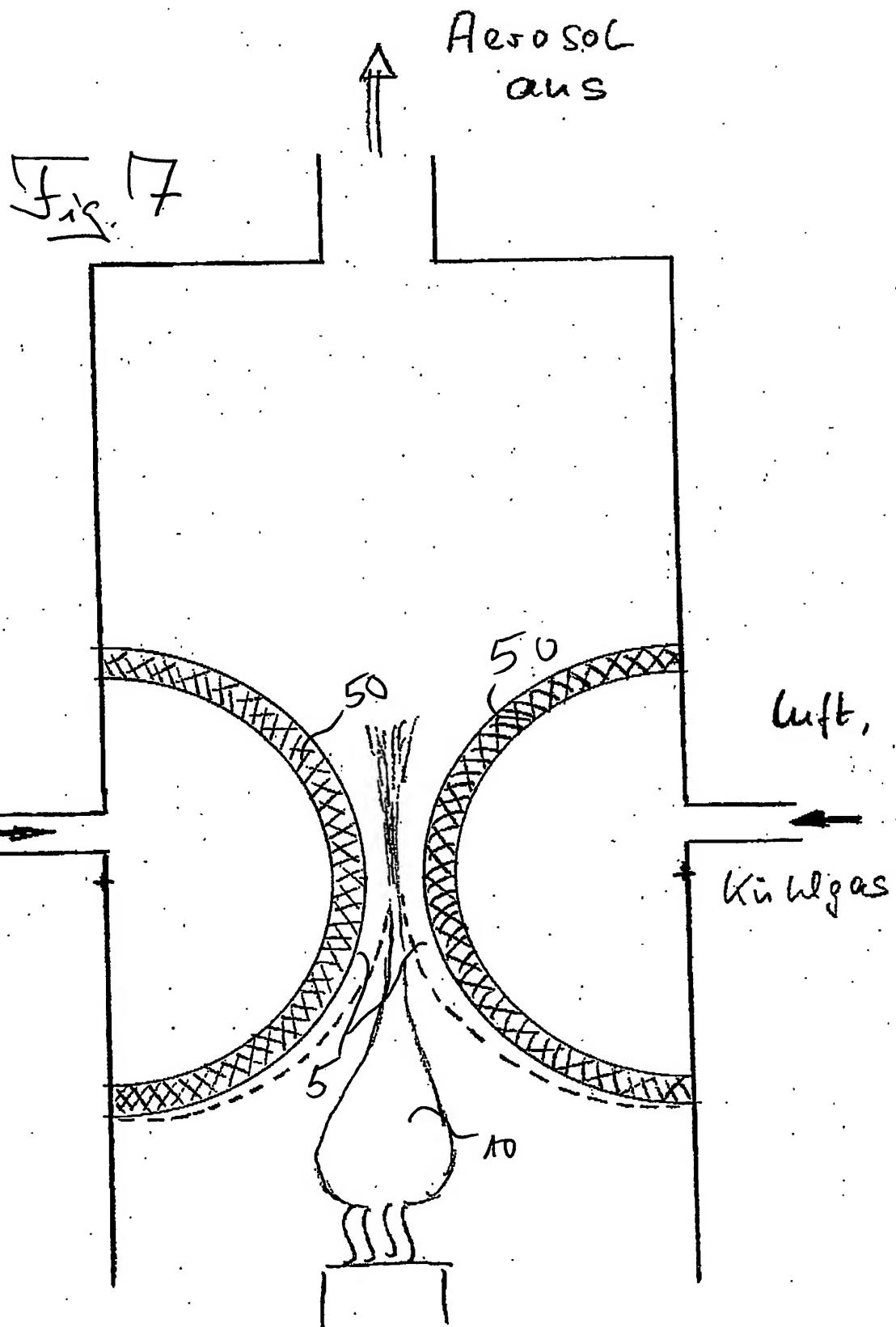


Fig. 6





**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**